

# 环境科学

(HUANJING KEXUE)

ENVIRONMENTAL SCIENCE

第39卷 第7期

Vol.39 No.7

**2018**

中国科学院生态环境研究中心 主办  
科学出版社 出版



目次

近20年来中国典型区域PM<sub>2.5</sub>时空演变过程 ..... 罗毅,邓琼飞,杨昆,杨扬,商春雪,喻臻钰 (3003)

西安市PM<sub>2.5</sub>健康损害价值评估 ..... 魏国茹,史兴民 (3014)

河北香河亚微米气溶胶组分特性、来源及其演变规律分析 ..... 江琪,王飞,孙业乐 (3022)

南京北郊秋季PM<sub>2.5</sub>碳质组分污染特征及来源分析 ..... 徐足飞,曹芳,高嵩,鲍孟盈,石一凡,章炎麟,刘晓妍,范美益,张雯淇,卞航,刘寿东 (3033)

临安夏季霾和清洁天气PM<sub>2.5</sub>化学组成特征比较 ..... 梁林林,孙俊英,张养梅,刘畅,徐婉筠,张根,刘旭艳,马千里 (3042)

盘锦市秋冬季节PM<sub>2.5</sub>中碳组分特征及来源解析 ..... 张蕾,姬亚芹,张军,王士宝,李越洋,赵静琦,张伟 (3051)

南京冬季气溶胶光学特性及黑碳光吸收增强效应 ..... 黄聪聪,马嫣,郑军 (3057)

夏季青岛大气粗细粒子中微量元素的浓度、溶解度及干沉降通量 ..... 李鹏志,李茜,石金辉,高会旺,姚小红 (3067)

太原市夏季降水中溶解态重金属特征及来源 ..... 叶艾玲,程明超,张璐,何秋生,郭利利,王新明 (3075)

杭州地区大气CO<sub>2</sub>体积分数变化特征及影响因素 ..... 浦静姣,徐宏辉,姜瑜君,杜荣光,齐冰 (3082)

典型工业源VOCs治理现状及排放组成特征 ..... 景盛翱,王红丽,朱海林,杨强,卢滨,夏阳,余传冠,陶士康,李莉,楼晟荣,黄成,唐伟,井宝莉 (3090)

地级市域工业VOCs排放源排特性及其控制技术应用现状:以秦皇岛市为例 ..... 胡旭睿,虎啸宇,王灿 (3096)

青霉素发酵尾气VOCs污染特征及健康风险评价 ..... 郭斌,么瑞静,张硕,马磊,康江,王姗姗 (3102)

轻型汽油车尾气OC和EC排放因子实测研究 ..... 黄成,胡馨遥,鲁君 (3110)

南京市大气降尘重金属污染水平及风险评价 ..... 田春晖,杨若杼,古丽扎尔·依力哈木,钱新,王金凤,李慧明 (3118)

西安城区路面细颗粒灰尘重金属污染水平及来源分析 ..... 石栋奇,卢新卫 (3126)

三峡库区主要河流秋季pCO<sub>2</sub>及其影响因素 ..... 罗佳宸,毛蓉,李思悦 (3134)

泾河支流地表水地下水的水化学特征及其控制因素 ..... 寇永朝,华琨,李洲,李志 (3142)

生物滞留对城市地表径流磷的去除途径 ..... 李立青,刘雨情,杨佳敏,王娟 (3150)

淀山湖浮游植物功能群演替特征及其与环境因子的关系 ..... 杨丽,张玮,尚光霞,张军毅,王丽卿,魏华 (3158)

抚仙湖硅藻群落的时空变化特征及其与水环境的关系 ..... 李蕊,陈光杰,康文刚,陈丽,王教元,陈小林,刘园园,冯钟,张涛 (3168)

蓝藻水华及其降解对沉积物-水微界面的影响 ..... 王永平,谢瑞,晁建颖,姬晶辉,于剑 (3179)

生物炭对人工湿地植物根系形态特征及净化能力的影响 ..... 徐德福,潘潜澄,李映雪,陈晓艺,王佳俊,周磊 (3187)

Mn-Co/蜂窝陶瓷催化剂制备及催化臭氧氧化对苯二酚效能 ..... 张兰河,高伟国,陈子成,张海丰,王旭明 (3194)

Fe/Cu双金属活化过一硫酸盐降解四环素的机制 ..... 李晶,鲍建国,杜江坤,冷一非,孔淑琼 (3203)

铈酸盐改性钛酸纳米片对水中Cd(II)的吸附行为及机制 ..... 康丽,刘文,刘晓娜,刘宏芳,李一菲 (3212)

铁锰原位氧化产物吸附微量磷的实验 ..... 蔡言安,毕学军,张嘉凝,董杨,刘文哲 (3222)

制备方法对铁钛复合氧化物磷吸附性能的影响:共沉淀法与机械物理混合法 ..... 仲艳,王建燕,陈静,张高生 (3230)

电导率对厌氧产酸、正渗透与微生物燃料电池耦合工艺运行性能的影响 ..... 陆宇琴,刘金梦,王新华,李秀芬,李晔 (3240)

不同磷浓度下生物除磷颗粒系统的COD需求 ..... 李冬,曹美忠,郭跃洲,梅宁,李帅,张杰 (3247)

基质浓度对ABR反应器SAD协同脱氮除碳效能影响 ..... 张敏,姜滢,汪瑶琪,韦佳敏,陈重军,沈耀良 (3254)

采用含硫铁化学污泥作为反硝化电子供体进行焦化废水中总氮深度去除 ..... 付炳炳,潘建新,马景德,王丰,吴海珍,韦朝海 (3262)

间歇曝气下短程硝化耦合污泥微膨胀稳定性 ..... 高春娣,孙大阳,安冉,赵楠,焦二龙,祝海兵 (3271)

基于高通量测序的SBR反应器丝状膨胀污泥菌群分析 ..... 洪颖,姚俊芹,马斌,徐双,张彦江 (3279)

纳米零价铁(NZVI)对厌氧产甲烷活性、污泥特性和微生物群落结构的影响 ..... 苏润华,丁丽雨,任洪强 (3286)

气水比对后置固相反硝化滤池工艺脱氮及微生物群落影响 ..... 张千,吉芳英,付旭芳,陈晴空 (3297)

活性污泥胞外多聚物提取方法的比较 ..... 孙秀玥,唐珠,杨新萍 (3306)

耐冷嗜碱蒙氏假单胞菌H97的鉴定及其好氧反硝化特性 ..... 蔡茜,何腾霞,冶青,李振轮 (3314)

PFOS前体物质(PreFOs)降解菌的分离鉴定及其降解特性 ..... 赵淑艳,周涛,王博慧,梁田坤,柳丽芬 (3321)

采油井场土壤微生物群落结构分布 ..... 蔡萍萍,宁卓,何泽,张敏,石建省 (3329)

铜尾矿坝不同恢复年限土壤理化性质和酶活性的特征 ..... 王瑞宏,贾彤,曹苗文,柴宝峰 (3339)

广西某赤泥堆场周边土壤重金属污染风险 ..... 郭颖,李玉冰,薛生国,廖嘉欣,王琼丽,吴川 (3349)

邻苯二甲酸酯在重庆市城市土壤中的污染分布特征及来源分析 ..... 杨志豪,何明靖,杨婷,卢俊峰,魏世强 (3358)

成都平原区水稻土有机碳剖面分布特征及影响因素 ..... 李珊,李启权,王昌全,张浩,肖怡,唐嘉玲,代天飞,李一丁 (3365)

塔里木盆地北缘绿洲不同连作年限棉田土壤有机碳、无机碳含量与环境因子的相关性 ..... 赵晶晶,贡璐,安申群,李杨梅,陈新 (3373)

塔里木盆地北缘绿洲4种土地利用方式土壤有机碳组分分布特征及其与土壤环境因子的关系 ..... 安申群,贡璐,李杨梅,陈新,孙力 (3382)

高原喀斯特土壤有机碳短期稳定的温度作用机制 ..... 唐国勇,张春华,刘方炎,马艳 (3391)

施硼对水稻幼苗吸收和分泌硼的影响 ..... 朱毅,孙国新,陈正,胡莹,郑瑞伦 (3400)

不同改良剂对铅镉污染农田水稻重金属积累和产量影响的比较分析 ..... 胡雪芳,田志清,梁亮,陈俊德,张志民,朱祥民,王士奎 (3409)

南京大气臭氧浓度的季节变化及其对主要作物影响的评估 ..... 赵辉,郑有飞,魏莉,关清 (3418)

三峡库区涪陵和忠县两地居民发汞含量水平及影响因素分析 ..... 程楠,谢青,樊宇飞,王永敏,张成,王定勇 (3426)

人粪便好氧堆肥过程中典型抗生素的消减特性 ..... 时红蕾,王晓昌,李倩 (3434)

COD/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>对青霉素菌渣厌氧消化影响 ..... 强虹,李玉友,裴梦富 (3443)

果蔬类垃圾主发酵堆肥产物储放和利用的恶臭释放特征 ..... 何品晶,蒋宁玲,徐贤,韦顺艳,邵立明,吕凡 (3452)

曾用抗生素磺胺二甲嘧啶对稻田NH<sub>3</sub>挥发的影响 ..... 庞炳坤,张敬沙,吴杰,李志琳,蒋静艳 (3460)

《环境科学》征订启事(3141) 《环境科学》征稿简则(3202) 信息(3229, 3433, 3451)

# 人粪便好氧堆肥过程中典型抗生素的消减特性

时红蕾, 王晓昌, 李倩

(西安建筑科技大学环境与市政工程学院, 西北水资源与环境生态教育部重点实验室, 国家城市非传统水资源开发利用国际科技合作基地, 西安 710055)

**摘要:** 以人粪便和锯末为试验材料, 进行 3 种不同温度(55℃、35℃和无温控)控制条件下的好氧堆肥试验, 对比温度对堆肥过程中 4 种人们大量应用的抗生素(四环素、金霉素、磺胺嘧啶和环丙沙星)消减特性的影响. 同时分别对抗生素在水环境、锯末载体和人粪便加锯末堆肥中的降解进行针对性试验, 分析人粪便好氧堆肥中影响抗生素降解的主要因素或作用, 并对其贡献进行了评价. 结果表明, 4 种抗生素在高温堆肥中的去除效果最好, 其去除率都在 90% 以上. 相比磺胺嘧啶和环丙沙星, 金霉素和四环素的降解对堆肥温度依赖更强. 四环素和金霉素在堆肥中的去除主要为水解作用导致的去除, 而磺胺嘧啶和环丙沙星的去除则主要归因于锯末有机质对其吸附的影响. 与其它 3 种抗生素不同, 微生物作用对堆肥中环丙沙星降解的影响是重要的, 贡献率接近 20%.

**关键词:** 抗生素; 好氧堆肥; 人粪便; 降解; 锯末吸附

中图分类号: X705 文献标识码: A 文章编号: 0250-3301(2018)07-3434-09 DOI: 10.13227/j.hjks.201711182

## Removal of Typical Antibiotics During Aerobic Composting of Human Feces

SHI Hong-lei, WANG Xiao-chang, LI Qian

(International Science & Technology Cooperation Center for Urban Alternative Water Resources Development, Key Laboratory of Northwest Water Resource, Environment and Ecology, Ministry of Education, School of Environment and Municipal Engineering, Xi'an University of Architecture and Technology, Xi'an 710055, China)

**Abstract:** Aerobic composting experiments were conducted under three different temperatures (55°C, 35°C, and non-temperature-controlled) with human feces and sawdust as the compost material and bulky matrix respectively. Attention was paid to the effects of temperature on the removal of four typical antibiotics (tetracycline, chlortetracycline, sulfadiazine, and ciprofloxacin) during human feces aerobic composting. Furthermore, three specific experiments were conducted to identify the possible antibiotic degradation mechanisms in aqueous solution and during composting with moist sterile sawdust but without feces and composting with feces and moist sterile sawdust. The most effective removal of the four antibiotics was achieved through thermophilic composting (55°C). At 55°C, more than 90% of all the antibiotics were removed. The degradation of tetracycline and chlortetracycline was more temperature-dependent than that of sulfadiazine and ciprofloxacin. Moreover, tetracycline and chlortetracycline removal was primarily through hydrolysis in moist environments. However, sulfadiazine and ciprofloxacin removal was mainly attributed to adsorption by sawdust particles. The contribution of microbial action to antibiotic degradation was insignificant for all the antibiotics except ciprofloxacin. Up to 20% of this antibiotic was degraded by microbial action.

**Key words:** antibiotic; aerobic composting; human feces; degradation; sawdust adsorption

抗生素是由一类微生物产生的化学物质, 具有抗病原体或其它微生物的作用, 广泛应用于人类疾病的预防和治疗. 然而由于生物利用率低, 30% ~ 90% 的抗生素不能在人体内代谢和降解, 以原形化合物的形式随粪便和尿液排出体外, 其中一些仍具有生物活性<sup>[1]</sup>. 四环素类、喹诺酮类和磺胺类抗生素是人们大量频繁使用的抗生素, 在粪便中经常被检出<sup>[2,3]</sup>. 含大量抗生素的粪便未经处理应用于土壤, 会使得抗生素在土壤中积累, 有助于有耐药性的细菌或抗性基因的产生及致病菌分子结构的重组<sup>[3,4]</sup>.

好氧堆肥是一种广泛应用的粪便无害化和资源化处理技术. 好氧堆肥在处理粪便的同时能有效去

除粪便中的抗生素残留<sup>[2,5,6]</sup>. 堆肥对抗生素降解效率的影响随堆肥条件的不同而异, 堆肥温度是影响抗生素降解的一个关键因素. Arian 等<sup>[5]</sup>设计试验研究了不同温度堆肥中金霉素的降解情况, 得到在 55℃ 堆肥条件下金霉素去除率为 99%, 而在无温控堆肥中去除率仅为 49%. 沈颖等<sup>[6]</sup>通过试验研究了不同堆体温度(35、45 和 55℃)对四环素类抗生素降解的影响, 发现在 55℃ 时降解率最大, 并得到

收稿日期: 2017-11-19; 修订日期: 2017-12-25

基金项目: 国家自然科学基金项目(2010116062); 陕西省污水处理与资源化重点科技创新团队项目(PIRT 2013KCT-13)

作者简介: 时红蕾(1987~), 男, 博士研究生, 主要研究方向为固体废物处理以及资源回收利用, E-mail: shihonglei1987@126.com

温度是影响土霉素和四环素降解的主要因素。

抗生素在堆肥过程中的降解除受堆肥条件和抗生素类型影响外,堆肥材料的成分同样发挥了重要作用<sup>[2,7]</sup>。粪便基质中含有大量的微生物,微生物的活动会直接影响堆肥中抗生素的降解或转化<sup>[8]</sup>。沈东升等<sup>[9]</sup>研究了接种微生物对猪粪堆肥中土霉素降解效率的影响,结果表明,经过 21 d 的堆肥,土霉素去除率从 62.7% 提升至 82.0%。作为堆肥载体和调理剂的锯末不仅可以提高堆肥孔隙率、调节含水率与 C/N 比,也提供了大量能促使抗生素降解的结合位点<sup>[10,11]</sup>。Kim 等<sup>[8]</sup>发现,锯末有机质的存在有助于堆肥中四环素和磺胺类药物的去除。Selvam 等<sup>[12]</sup>也通过研究发现在猪粪堆肥中添加锯末促进了磺胺嘧啶、金霉素和环丙沙星的降解。现在的研究主要关注禽畜粪便堆肥中抗生素的去除情况,而以人粪便作为堆肥原料,不同抗生素在其堆肥过程中的降解过程和主要的降解特性还有待研究。

本研究以人粪便为堆肥基质,锯末作为载体,进行恒中温(35℃)、恒高温(55℃)及无温控条件下的人粪便好氧堆肥试验,分析堆肥温度对 4 种典型抗生素(四环素、金霉素、磺胺嘧啶和环丙沙星)降解的影响。同时通过针对性试验研究堆肥原料(水分、锯末载体和人粪便基质)中影响 4 种抗生素降解的主要因素或作用并评价其贡献,以期含抗生素的人粪便堆肥无害化处理提供理论依据。

## 1 材料与方法

### 1.1 试验材料

本试验所用的堆肥原料由人粪便和锯末组成。人粪便取自校内某学生公寓,收集处理后分装,置于 -20℃ 的冰箱中冷藏保存。作为空白载体的锯末,由西安市某木材加工厂提供,筛选出粒径 1~2 mm 的锯末。锯末和人粪便的理化性质如表 1 所示。

表 1 人粪便和锯末的理化性质

Table 1 Physicochemical properties of the human feces and sawdust used in this study

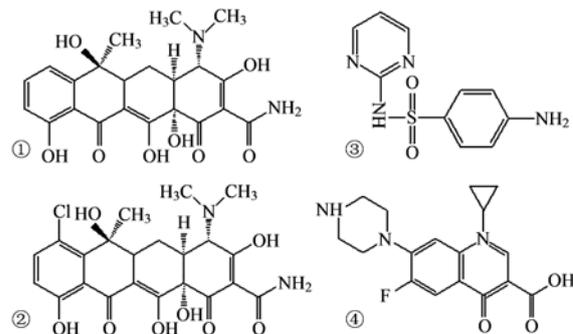
堆肥原料	含水率 /%	COD /g·kg <sup>-1</sup>	TOC /g·kg <sup>-1</sup>	总氮 /g·kg <sup>-1</sup>
人粪便	82.3	1 499.1	506.6	65.1
锯末	12.1	1 165.8	378.1	1.5

标准品四环素盐酸盐(tetracycline, TC, 纯度 ≥ 97.5%)、金霉素盐酸盐(chlortetracycline, CTC, 纯度 ≥ 99.0%)、磺胺嘧啶(sulfadiazine, SDZ, 纯度 ≥ 99.3%)、环丙沙星(ciprofloxacin, CIP, 纯度 ≥

99.5%)及内标物地美环素(纯度 ≥ 98.3%)和磺胺对甲氧嘧啶(纯度 ≥ 99.9%)购自 Sigma-Aldrich 公司。4 种目标抗生素的详细信息包括分子结构、相对分子质量、辛醇水分配系数( $\lg K_{ow}$ )和酸度系数( $pK_a$ )总结在表 2 中。

表 2 4 种目标抗生素的性质

抗生素	分子结构	相对分子质量	$\lg K_{ow}$	$pK_a$
四环素(TC)	①	444.44	-1.29	3.30; 7.68; 9.30 <sup>[16]</sup>
金霉素(CTC)	②	478.89	-0.62 <sup>[13]</sup>	3.30; 7.44; 9.27 <sup>[16]</sup>
磺胺嘧啶(SDZ)	③	250.28	-0.09 <sup>[14]</sup>	2.10; 6.28 <sup>[17]</sup>
环丙沙星(CIP)	④	331.4	0.28 <sup>[15]</sup>	6.2; 8.8 <sup>[18]</sup>



### 1.2 试验装置

本研究采用的试验装置如图 1 所示。该反应器由 2 层柱状有机玻璃构成,体积为 25 L。为了维持好氧环境,在每个反应器底部建立一个 5 cm 高的气室,用金属支撑材料。在材料上打小孔既不使堆肥样品漏下又可保持通风环境。空气通过气泵进入气室,通气量为 1.5 L·min<sup>-1</sup>。反应器顶部加盖并在盖上钻孔以保持通风并可减少水分流失。对反应器进行避光处理。反应器外层空间装热水构成水浴环境。水浴温度由热水泵、温度传感器、加热棒以及温控微处理器进行联合控制。

### 1.3 试验设计

试验共设置 3 组针对性方案,每组方案根据温度条件的不同设 3 个处理,具体如下。

#### 1.3.1 方案 I: 人粪便好氧堆肥试验

试验设 3 种处理:高温堆肥处理(堆肥处于恒高温环境);中温堆肥处理(堆肥处于恒中温环境);无温控堆肥处理。用水浴系统控制中温和高温堆肥处于恒温条件下,温度分别维持在 35℃ 和 55℃。无温控堆肥不进行水浴加热。堆肥试验在室

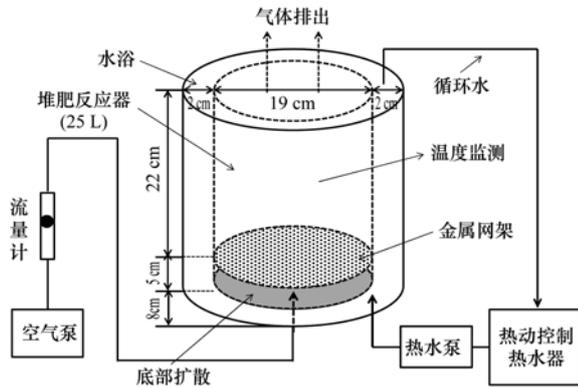


图 1 堆肥反应器结构示意图

Fig. 1 Schematic diagram of the ecological composting reactor

温 25℃ 的环境中进行。

有研究发现,经过 10~12 d 的堆肥,有机物和无机物能达到一个稳定的浓度并且与氮素转换有关的反应也达到了平衡状态<sup>[19]</sup>。本试验中添加了抗生素,为保证堆肥产物的安全,堆肥周期设为 20 d。每个处理加入 0.2 kg 粪便和 0.8 kg 的锯末(均为干重)。4 种抗生素(TC、CTC、SDZ、CIP)在 3 种不同处理中的添加量均为 1 mg·kg<sup>-1</sup>。在整个堆肥周期,含水率维持在 60% 左右。每天定时取样约 8 g,取样前将堆料搅拌均匀。样品储存在 -20℃ 的冰箱中。每个处理重复 3 次。

### 1.3.2 方案 II: 锯末载体中抗生素降解试验

为了研究锯末载体在堆肥中对抗生素降解的影响,进行了 3 种不同温度条件下的纯锯末(锯末进行辐射灭菌)中抗生素降解试验。试验设 3 种处理:高温处理;中温处理;无温控处理。试验在与 1.3.1 部分相同的反应器中进行。反应器进行消毒灭菌,并置于洁净环境中。取 1.0 kg 干重锯末加去离子水,调节含水率在 60% 左右。在 3 种不同处理中均加标 1 mg·kg<sup>-1</sup> 的目标抗生素(TC、CTC、SDZ、CIP)。具体的试验方法和操作流程与 1.3.1 节相同。

### 1.3.3 方案 III: 水溶液中抗生素降解试验

准确称量 10 mg 的 4 种抗生素(TC、CTC、SDZ、CIP)分别溶于含 10 mL 去离子水中得到浓度 1 000 μg·mL<sup>-1</sup> 储备液。分别取 4 种抗生素的储备液稀释于装有 1 L 去离子水的烧杯中,得到 1 μg·mL<sup>-1</sup> 的抗生素水溶液。烧杯用保鲜膜封口以防止水分蒸发,然后用铝箔纸包裹,完全覆盖烧杯避光。1 μg·mL<sup>-1</sup> 的 4 种抗生素水溶液配制 3 份,分别静置于恒定的 25、35 和 55℃ 环境中。试验周期为 20 d。每天收集 2 mL 样品检测抗生素浓度。

## 1.4 理化参数分析方法

无温控堆肥的堆体温度采用便携式温度计测定,每天监测 2 次,在堆体的上层、中层、下层测定,以平均值作为堆体温度。样品含水率用烘干法测定。pH 值的测定方法是将新鲜样品与无 CO<sub>2</sub> 蒸馏水按 1:10(质量浓度)比例混合,在室温下用振荡器连续振荡 30 min,静置 30 min 后,用精密 pH 计( PHS-3C)测定。其他堆肥参数的测定方法参考文献[20]。每次测定均设 3 次平行试验,取平均值,最大误差限 <5%。

## 1.5 抗生素分析方法

取冷冻干燥粉碎后的样品,提取方法参考文献[21]并进行了改进。准确称重 1.0 g 样品,加入 0.5 mL 0.5 μg·mL<sup>-1</sup> 内标物,用 10 mL Na<sub>2</sub>EDTA-McIlvaine 缓冲液(pH=4)提取。混合液涡旋混合 30 s,然后放入超声水浴处理 15 min,在 4 000 r·min<sup>-1</sup> 速度下离心 10 min,取上清液。重复以上步骤两次,合并上清液后过 0.45 μm 尼龙膜。

6 mL 甲醇,6 mL Na<sub>2</sub>EDTA-McIlvaine 缓冲液活化 Oasis HLB(3cc/60 mg)柱后,提取液以约 10 mL·min<sup>-1</sup> 过柱,超纯水洗涤,真空干燥 30 min。用 9 mL 甲醇洗脱分析物到一个干净的 10 mL 试管中。在 45℃ 电热板上用柔和的 N<sub>2</sub> 吹脱至近干。1 mL 注射液(甲醇:水=1:9)溶解残留物。最后将溶液通过 0.22 μm 的尼龙滤头进入 2 mL 进样小瓶。

应用超高效液相色谱-电喷雾-串联三重四级杆质谱(Acquity TQD, Waters, Milford, MA, USA)对抗生素进行分析。ACQUITY UPLC BEH-C18 柱(50 mm, 2.1 mm i. d., 1.7 μm)被用来分析目标物。柱温 35℃;流速 0.20 mL·min<sup>-1</sup>;注射体积 10 μL。流动相组分:A,甲醇:乙腈(1:1);B,0.5% 甲酸。溶剂混合:0 min 10% A,90% B;4 min 10% A,90% B;5 min 30% A,70% B;7 min 40% A,60% B;7.1 min 10% A,90% B;8 min 10% A,90% B。总运行时间 8 min。采用 ESI+ 离子模式,多反应监测,毛细管电压 3.3 kV,锥孔电压 32 V,源温度 110℃,去溶剂气温度 350℃,去溶剂气流量 400 L·h<sup>-1</sup>,锥孔气流量 50 L·h<sup>-1</sup>。为了检测抗生素的提取效率,在空白堆肥原料中添加不同浓度的 4 种抗生素,每个浓度重复 4 次。4 种目标抗生素和内标物的质谱参数、回收率、方法检测限(MDL)和方法定量限(MQL)总结在表 3 中。

## 1.6 数据处理与分析

数据的统计分析采用 Microsoft Excel 2016 进

行处理和制图,采用 SPSS Statistic 19.0 软件进行统计分析. 利用单因素方差分析法(ANOVA)进

行不同样品差异显著性检验,差异显著性水平为 0.05.

表 3 抗生素及内标物的质谱参数、回收率、方法检测限及定量限

Table 3 Basic parameters for the UPLC-MS/MS analyses of the four antibiotics and two internal standards

抗生素	母离子 ( <i>m/z</i> )	子离子 ( <i>m/z</i> )	碰撞能量 /eV	回收率(RSD)/% ( <i>n</i> = 4)	MDL(DW) / $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$	MQL(DW) / $\mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$
四环素 <sup>1)</sup>	445.08	410.06	35	89.8(2.0)	7.1	20.2
金霉素 <sup>1)</sup>	478.89	443.89	31	93.2(1.6)	3.8	11.5
磺胺嘧啶 <sup>2)</sup>	250.98	155.95	16	95.5(4.2)	4.3	13.9
环丙沙星 <sup>2)</sup>	332.08	314.12	20	94.8(3.5)	5.6	16.7
地美环素	464.93	447.91	33			
磺胺对甲氧嘧啶	280.98	91.88	33			

1)地美环素; 2)磺胺对甲氧嘧啶

## 2 结果与讨论

### 2.1 堆肥温度变化

3 种不同人粪便堆肥处理的堆肥温度见图 2. 3 种处理的初始温度与环境温度相近,堆肥开始后微生物活性恢复,微生物对有机物代谢使得中温和无温控堆肥的温度快速上升,最高时比室温高 13℃ 以上. 在无温控堆肥中,随着堆肥进行,堆料中大部分易于生化降解的有机物被分解,导致微生物活动减弱,产热减少,堆体温度波动降低<sup>[22]</sup>. 在无温控堆肥的第 11 d 左右,由于微生物对一些难降解的有机物的分解利用<sup>[23]</sup>,发酵产热,堆体温度有一个短暂的上升阶段. 随着有机物逐渐被分解利用,腐殖质不断增多和稳定化,堆肥进入腐熟阶段,堆体温度慢慢下降至室温. 本试验中无温控堆肥温度较之前的研究中低,但与 Ho 等<sup>[24]</sup>的研究结果相似,主要原因是堆肥体积较小,虽有保温措施,但散热较快. 对家庭尺度堆肥来说,由于规模小散热严重,因此如果不采用外部加热的话,堆肥过程很难维持较高的温度. 中温堆肥温度变化趋势与无温控堆肥相似,温度上升主要发生在堆肥初始阶段,随后逐渐降低到与设定温度(35℃)相同,直到堆肥周期结束. 在高温堆肥中,未观察到有明显的温度上升是因为设定温度比微生物代谢引起的堆肥温度更高.

### 2.2 人粪便好氧堆肥中抗生素的去除

好氧堆肥能有效去除粪便中大部分残留的抗生素,但不同的抗生素由于分子结构不同,其降解特性又有着明显的不同. 如图 3 所示,四环素[图 3(a)]和金霉素[图 3(b)]在堆肥中的去除过程相似且都明显受温度影响,而磺胺嘧啶[图 3(c)]和环丙沙星[图 3(d)]的去除受温度影响不明显. 四环素和金霉素在无温控堆肥结束后的去除率仅为 43.1% 和 58.1%,在中温堆肥中的去除率增加到 66.4% 和

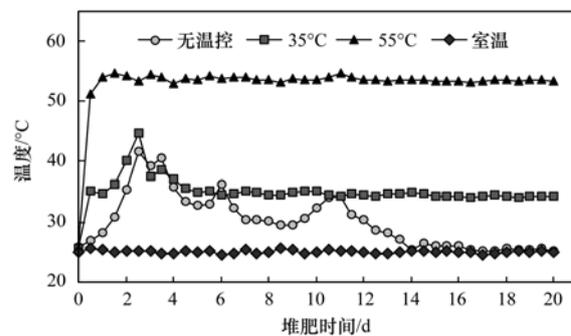


图 2 堆肥过程中温度的变化

Fig. 2 Temperature variation during composting

82.1%, 在高温堆肥中的去除率更是达到了 97.3% 和 99.5%. 如表 2 所示,四环素和金霉素都是多环并四苯羧基酰胺结构,具有相似的分子量和官能团如二甲氨基、酚羟基和三羰基甲烷. 两种抗生素在分子结构上唯一的区别是第一个苯环上离子的不同,从而使金霉素比四环素有更大的  $\lg K_{ow}$  值,这可能是在相同温度条件下金霉素的去除率比四环素略高的原因之一. 四环素和金霉素在高温堆肥中的去除率明显高于在中温和无温控堆肥,表明堆肥温度影响抗生素的降解,去除效率随堆肥最高温度的升高而提高<sup>[2,8]</sup>. 同时四环素和金霉素在高温堆肥的前 10 d,去除率已接近最终去除率,显示了四环素和金霉素在人粪便基质堆肥中需要 10 d 左右的高温期可达到高效去除.

磺胺嘧啶和环丙沙星在分子结构上与四环素和金霉素明显不同. 磺胺嘧啶属于磺酰胺类抗生素,其分子结构中酰胺基连接的磺酰基比多环结构更容易分解<sup>[12,25]</sup>. 磺胺嘧啶和环丙沙星的  $\lg K_{ow}$  值比四环素和金霉素的更高. 对磺胺嘧啶和环丙沙星来说,在堆肥的初始阶段去除率不同,但在堆肥第 6 d 后看起来温度对两种抗生素的去除率影响较小. 在堆肥的前 7 d,磺胺嘧啶在不同处理中去除率都在

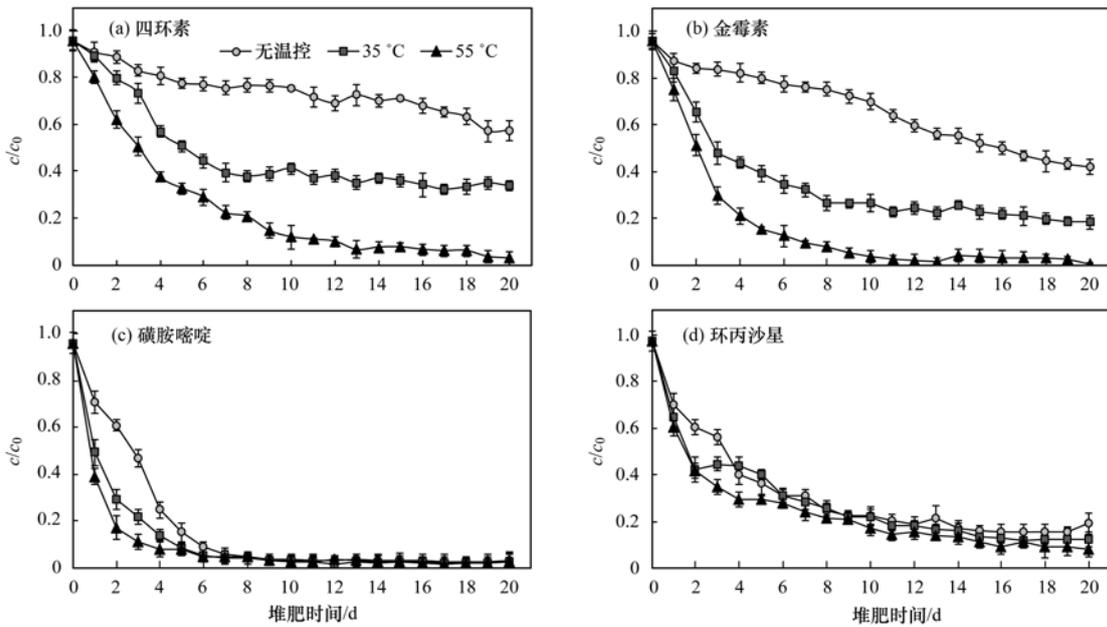


图3 四环素、金霉素、磺胺嘧啶和环丙沙星在20 d堆肥中的去除

Fig. 3 Removal of the four antibiotics (tetracycline, chlortetracycline, sulfadiazine, and ciprofloxacin) during the 20 d composting experiment

90%以上. 最终磺胺嘧啶在高温、中温和无温控堆肥中的去除率分别为97.58%、97.48%和96.79%,环丙沙星的去除率分别为91.8%、87.4%和84.2%.

### 2.3 堆肥中影响抗生素降解的因素

抗生素随粪便排泄物进入环境后会经过吸附、水解和微生物降解等一系列转化过程从环境中逐步清除<sup>[26]</sup>. 粪便堆肥过程中残留抗生素的去除不仅受来自人粪便基质中的微生物作用的影响,堆肥水环境中抗生素的水解(HD)和锯末载体对抗生素的吸附作用(SA)都影响抗生素的转换最终导致其降解. 人粪便的成分复杂,含有大量的有机物、无机物和阴阳离子等,这些物质都影响抗生素的降解. 好氧堆肥的本质是在适当的条件下微生物的新陈代谢<sup>[12,27]</sup>. 人粪便中的各种成分及物质的变化,究其根本,主要是受堆肥中微生物的作用的影响来实现<sup>[2]</sup>. 本研究把人粪便中影响抗生素降解的因素作为一个整体,统称为人粪便基质对降解的影响(MA),以便于在本节中分析量化. 在这一节中,根据具体的试验结果,讨论在3种不同温度堆肥处理中,影响抗生素降解的3种因素及贡献. 如果把由于受水解作用、锯末载体和人粪便基质导致的抗生素去除率用 $R_{HD}$ 、 $R_{SA}$ 和 $R_{MA}$ 来表示,那人粪便好氧堆肥中抗生素总去除率可表示为 $R_{TF} = R_{HD} + R_{SA} + R_{MA}$ .

#### 2.3.1 水溶液中抗生素的降解

图4显示了3种不同温度条件下水溶液中抗生

素的降解. 总体来说,4种抗生素的降解受温度的影响较大,降解率随温度的升高而增大. 对四环素和金霉素来说,水解是四环素类抗生素在水环境中降解的主要途径<sup>[28]</sup>,并且温度对其降解强度影响显著<sup>[25]</sup>. 从图4(a)和图4(b)得到,四环素和金霉素在室温条件下的 $R_{HD}$ 分别为21.0%和46.0%、中温条件下升高到51.3%和76.7%,高温条件下进一步升高到90.8%和95.3%. 四环素和金霉素由于其分子结构的不同,在3种不同温度条件下展现出不同的降解效率. 另一方面,温度越高,分子的碰撞越频繁,这也是导致高温条件下有更高降解率的原因<sup>[25]</sup>.

水溶液中温度对磺胺嘧啶降解的影响小于四环素和金霉素,在25、35和55℃条件下的 $R_{HD}$ 分别为15.8%、17.9%和27.9%[图4(c)]. 磺胺嘧啶的 $R_{HD}$ 远远低于相同条件下四环素和金霉素的 $R_{HD}$ ,原因是由于结构的空间和电子效应,磺酰胺官能团通常比酰胺官能团更难被打破<sup>[29]</sup>. 环丙沙星的降解受温度影响很小,在不同温度条件下的 $R_{HD}$ 均小于45%.

#### 2.3.2 锯末载体中抗生素的去除

图5显示了不同温度条件下锯末载体中抗生素的去除. 锯末在试验前经过灭菌,用细菌平板计数法检测后无微生物发现. 在堆肥周期内,同样每天对锯末样品进行检测,无细菌群落发现,表明在20 d的锯末试验中无微生物作用. 因此,本试验中4种

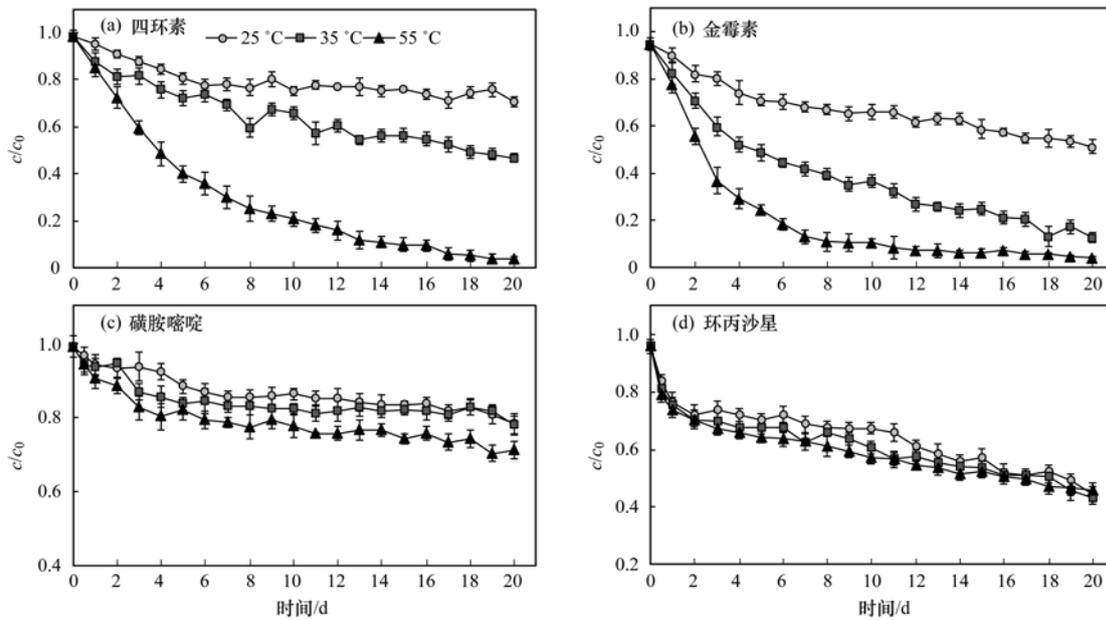


图 4 水溶液中抗生素的降解

Fig. 4 Degradation of antibiotics in aqueous solutions

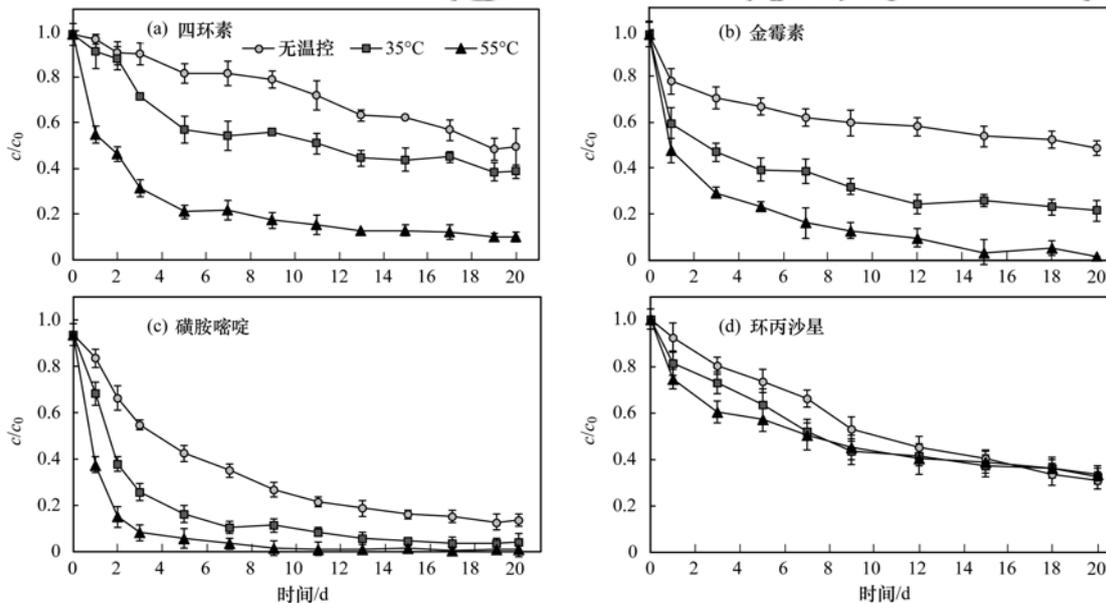


图 5 锯末载体中抗生素的去除

Fig. 5 Decrease in antibiotic concentrations in the moist sawdust matrix

抗生素浓度的减少受两种因素的影响,分别为抗生素的水解作用和锯末颗粒吸附作用导致的去除. 如果在本例中抗生素的去除定义为  $R_{TS}$ , 可得  $R_{TS} = R_{HD} + R_{SA}$ .

四环素在锯末载体中的去除受温度的强烈影响,在无温控、中温和高温条件下的  $R_{TS}$  分别为 40.9%、60.9% 和 95.8% [图 5(a)], 明显高于四环素在相同条件下的  $R_{HD}$  值, 这表明锯末颗粒的存在对四环素在堆肥中的去除起了促进作用, 其作用大

于四环素的水解. 从图 5(b) 得到相似的结果, 金霉素在无温控、中温和高温条件下的  $R_{TS}$  分别为 52.7%、80.4% 和 98.6%, 这也明显高于相同条件下的  $R_{HD}$  值. 与四环素类抗生素相比, 磺胺嘧啶受锯末颗粒的影响更强烈, 通过图 5(c) 可得, 磺胺嘧啶在无温控、中温和高温条件下的  $R_{TS}$  分别为 87.4%、95.8% 和 96.5%, 远高于相同条件下的  $R_{HD}$  值. 温度对环丙沙星的  $R_{TS}$  影响仍不显著 [图 5(d)], 然而得到的  $R_{TS}$  值 (约 69%) 明显高于  $R_{HD}$  值 (约 45%).

有研究报道过在堆肥中添加锯末能显著提高抗生素的去除效果<sup>[30,31]</sup>. 在堆肥过程中,随着温度的升高,锯末中的有机物质可能产生更多易于与抗生素结合的点位,使其很容易被吸附并转化成不可提取的形式<sup>[8]</sup>. 因此,在有高含量有机质环境中抗生素及其代谢物的浓度可随时间的推移而减少.

### 2.3.3 对影响抗生素降解因素的评价

通过对抗生素在水溶液中降解的检测,由于抗生素的水解得到  $R_{HD}$ . 通过抗生素在锯末载体中的

降解试验,分析了锯末颗粒的存在对抗生素去除的影响并得到  $R_{TS}$  ( $R_{TS} = R_{HD} + R_{SA}$ ). 如果人粪便好氧堆肥中抗生素的总去除率(图3)用  $R_{TF}$  表示,则  $R_{TF}$  和  $R_{TS}$  之间的差异为人粪便基质对抗生素降解的影响,因此,从图3和图5可得  $R_{MA} = R_{TF} - R_{TS}$ .

根据从图4得到的  $R_{HD}$  值,图5中的  $R_{TS}$  值,计算可得  $R_{SA} = R_{TS} - R_{HD}$ . 再加上提到过的  $R_{MA} = R_{TF} - R_{TS}$ ,可计算这3种影响因素或作用对堆肥中抗生素去除的贡献(图6).

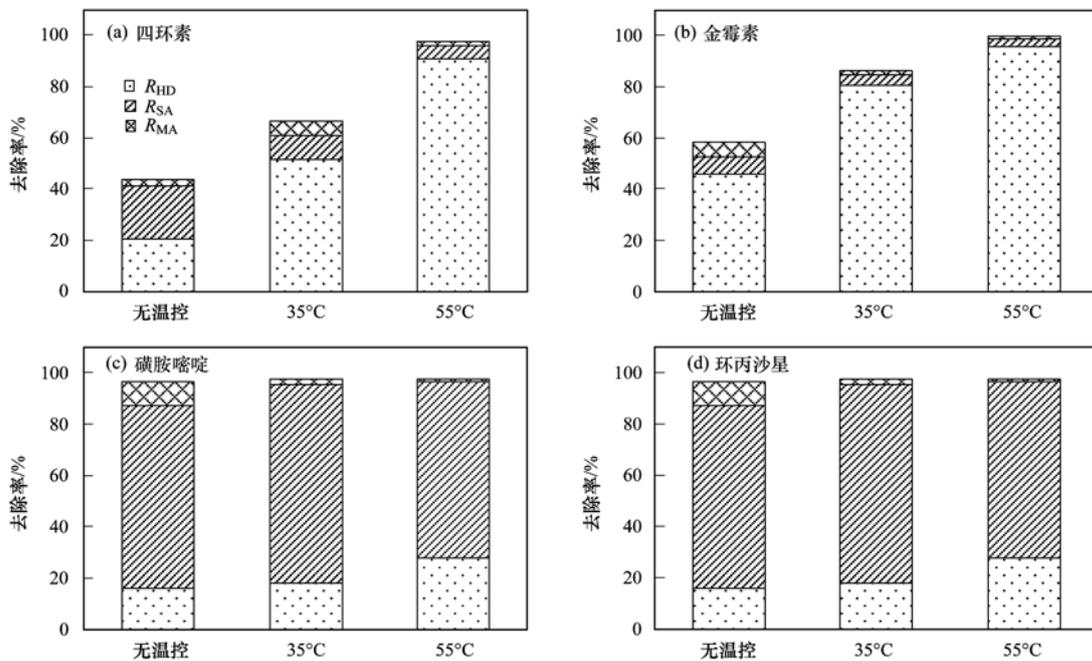


图6 人粪便好氧堆肥过程中影响抗生素降解因素的评价

Fig. 6 Evaluation of the various antibiotic degradation mechanisms in the aerobic composting processes

从图6(a)可得,四环素在20 d的无温控堆肥后去除率仅为43.1%,其中HD和SA起主要作用(每种约20%),MA作用较小. 在中温堆肥中,四环素的总去除率为66.4%,但与无温控堆肥相比,四环素去除率的增加主要是由于HD的作用. 四环素在高温堆肥中的总去除率达到了97.3%,其中90.8%是由于HD引起的,来自SA和MA的作用较小(不超过7%). 因此,水解作用是导致带有四环结构的四环素在堆肥中降解的主要因素,随着堆肥温度的升高,反应活性增加,水解作用增强<sup>[32,33]</sup>. 高温堆肥中pH值降低,逐渐形成酸性的环境也可部分地增强抗生素的水解作用. 对四环素来说,微生物作用可能无法提供足够的能量来分解四环结构.

HD作用在3种不同温度堆肥中均是影响金霉素降解的主要作用[图6(b)]. 在无温控堆肥中,金霉素的总去除率为58.1%,其中HD贡献了46%.

中温和高温堆肥中,金霉素的总去除率为82.1%和99.5%,其中HD的贡献为76.7%和95.3%. 相比于四环素,金霉素分子结果中氯离子的存在明显增强了其水解的能力.

不同于四环素和金霉素,堆肥中磺胺嘧啶的去除主要受SA作用的影响,在3种不同温度堆肥中磺胺嘧啶的总去除率均为97%左右,SA作用贡献了其中的60%[图6(c)]. MA只在无温控堆肥中对磺胺嘧啶的去除做了一定贡献(约11%),在更高温度的堆肥中影响很小. 这表明带有磺酰胺结构的磺胺嘧啶对固体颗粒表面(本研究为锯末)表现出了强的亲和能力,磺胺嘧啶在堆肥中的去除主要是由于与锯末颗粒中大量吸附点位的反应.

虽然环丙沙星在无温控、中温和高温堆肥中的总去除率增加不明显,从84.2%增加到87.4%和91.8%[图6(d)],HD(总约46%)、SA(20%~

25%) 和 MA(10% ~ 18%) 的贡献变化不大, 每种因素或作用似乎都没有受到堆肥温度的强烈影响。

### 3 结论

(1) 堆肥温度影响抗生素的降解效率。在 20 d 的不同温度堆肥处理中, 4 种抗生素在高温堆肥中的去除效果最好且去除率都在 90% 以上, 其次是中温堆肥, 无温控堆肥去除效果最差。

(2) 相比磺胺嘧啶和环丙沙星, 堆肥中金霉素和四环素的降解对温度依赖更强。磺胺嘧啶在 3 种不同堆肥温度中的去除率相差不大都在 96% 以上, 而金霉素和四环素在中温和无温控堆肥中的去除情况较差。

(3) 尽管堆肥的本质是微生物的新陈代谢, 但微生物作用并不是堆肥中影响抗生素去除的主要因素, 物化作用如水解和锯末有机质的吸附作用对抗生素的去除影响更大。四环素和金霉素在堆肥中的降解主要受水解作用的影响, 对于磺胺嘧啶和环丙沙星来说, 大量锯末有机质的吸附是导致其最终去除的主要影响因素。

#### 参考文献:

- [ 1 ] Alcock R E, Sweetman A, Jones K C. Assessment of organic contaminant fate in waste water treatment plants I: Selected compounds and physicochemical properties [J]. *Chemosphere*, 1999, **38**(10): 2247-2262.
- [ 2 ] 潘兰佳, 唐晓达, 汪印. 畜禽粪便堆肥降解残留抗生素的研究进展[J]. *环境科学与技术*, 2015, **38**(12Q): 191-198.  
Pan L J, Tang X D, Wang Y. Research progress of residual antibiotics degradation in livestock and poultry feces composting [J]. *Environmental Science & Technology*, 2015, **38**(12Q): 191-198.
- [ 3 ] Schmitt H, Stoob K, Hamscher G, *et al.* Tetracyclines and tetracycline resistance in agricultural soils: microcosm and field studies[J]. *Microbial Ecology*, 2006, **51**(3): 267-276.
- [ 4 ] Lalumera G M, Calamari D, Galli P, *et al.* Preliminary investigation on the environmental occurrence and effects of antibiotics used in aquaculture in Italy[J]. *Chemosphere*, 2004, **54**(5): 661-668.
- [ 5 ] Arıkan O, Mulbry W, Ingram D, *et al.* Minimally managed composting of beef manure at the pilot scale: effect of manure pile construction on pile temperature profiles and on the fate of oxytetracycline and chlortetracycline [J]. *Bioresource Technology*, 2009, **100**(19): 4447-4453.
- [ 6 ] 沈颖, 魏源送, 郑嘉熹, 等. 猪粪中四环素类抗生素残留物的生物降解[J]. *过程工程学报*, 2009, **9**(5): 962-968.  
Shen Y, Wei Y S, Zheng J X, *et al.* Biodegradation of tetracycline antibiotics residues in swine manure [J]. *The Chinese Journal of Process Engineering*, 2009, **9**(5): 962-968.
- [ 7 ] 王桂珍, 李兆君, 张树清, 等. 土霉素在鸡粪好氧堆肥过程中的降解及其对相关参数的影响[J]. *环境科学*, 2013, **34**(2): 795-803.  
Wang G Z, Li Z J, Zhang S Q, *et al.* Degradation of oxytetracycline in chicken feces aerobic-composting and its effects on their related parameters[J]. *Environmental Science*, 2013, **34**(2): 795-803.
- [ 8 ] Kim K R, Owens G, Ok Y S, *et al.* Decline in extractable antibiotics in manure-based composts during composting [J]. *Waste Management*, 2011, **32**(1): 110-116.
- [ 9 ] 沈东升, 何虹秦, 汪美贞, 等. 土霉素降解菌 TJ-1 在猪粪无害化处理中的作用[J]. *环境科学学报*, 2013, **33**(1): 147-153.  
Shen D S, He H Z, Wang M Z, *et al.* The role of oxytetracycline-degrading bacterium TJ-1 on the hazard-free treatment of pig manure [J]. *Acta Scientiae Circumstantiae*, 2013, **33**(1): 147-153.
- [ 10 ] Gu C, Karthikeyan K G, Sibley S D, *et al.* Complexation of the antibiotic tetracycline with humic acid[J]. *Chemosphere*, 2007, **66**(8): 1494-1501.
- [ 11 ] Kulshrestha P, Giese Jr R F, Aga D S. Investigating the molecular interactions of oxytetracycline in clay and organic matter: insights on factors affecting its mobility in soil [J]. *Environmental Science & Technology*, 2004, **38**(15): 4097-4105.
- [ 12 ] Selvam A, Zhao Z Y, Wong J W C. Composting of swine manure spiked with sulfadiazine, chlortetracycline and ciprofloxacin[J]. *Bioresource Technology*, 2012, **126**: 412-417.
- [ 13 ] Dolliver H, Gupta S, Noll S. Antibiotic degradation during manure composting[J]. *Journal of Environmental Quality*, 2008, **37**(3): 1245-1253.
- [ 14 ] Sarmah A K, Meyer M T, Boxall A B A. A global perspective on the use, sales, exposure pathways, occurrence, fate and effects of veterinary antibiotics (VAs) in the environment [J]. *Chemosphere*, 2006, **65**(5): 725-759.
- [ 15 ] Pavlović D M, Pinušić T, Periša M, *et al.* Optimization of matrix solid-phase dispersion for liquid chromatography tandem mass spectrometry analysis of 12 pharmaceuticals in sediments [J]. *Journal of Chromatography A*, 2012, **1258**: 1-15.
- [ 16 ] Qiang Z M, Adams C. Potentiometric determination of acid dissociation constants ( $pK_a$ ) for human and veterinary antibiotics [J]. *Water Research*, 2004, **38**(12): 2874-2890.
- [ 17 ] Babić S, Horvat A J M, Pavlović D M, *et al.* Determination of  $pK_a$  values of active pharmaceutical ingredients[J]. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 2007, **26**(11): 1043-1061.
- [ 18 ] Chen H, Gao B, Li H, *et al.* Effects of pH and ionic strength on sulfamethoxazole and ciprofloxacin transport in saturated porous media[J]. *Journal of Contaminant Hydrology*, 2011, **126**(1-2): 29-36.
- [ 19 ] Zavala M A L, Funamizu N, Takakuwa T. Biological activity in the composting reactor of the bio-toilet system[J]. *Bioresource Technology*, 2005, **96**(7): 805-812.
- [ 20 ] 国家环境保护总局. 水和废水监测分析方法[M]. (第四版). 北京: 中国环境科学出版社, 2002.  
State Environmental Protection Administration of China. Monitoring and analytic methods of water and wastewater (4th ed.) [M]. Beijing: Environmental Science Press of China, 2002.
- [ 21 ] Biak-Bielińska A, Kumirska J, Palavinskas R, *et al.* Optimization of multiple reaction monitoring mode for the trace

- analysis of veterinary sulfonamides by LC-MS/MS[J]. *Talanta*, 2009, **80**(2): 947-953.
- [22] Liang C, Das K C, McClendon R W. The influence of temperature and moisture contents regimes on the aerobic microbial activity of a biosolids composting blend [J]. *Bioresource Technology*, 2003, **86**(2): 131-137.
- [23] Li Q, Wang X C, Zhang H H, *et al.* Characteristics of nitrogen transformation and microbial community in an aerobic composting reactor under two typical temperatures [J]. *Bioresource Technology*, 2013, **137**: 270-277.
- [24] Ho Y B, Zakaria M P, Latif P A, *et al.* Degradation of veterinary antibiotics and hormone during broiler manure composting [J]. *Bioresource Technology*, 2013, **131**: 476-484.
- [25] Loftin K A, Adams C D, Meyer M T, *et al.* Effects of ionic strength, temperature, and pH on degradation of selected antibiotics[J]. *Journal of Environmental Quality*, 2008, **37**(2): 378-386.
- [26] Wu X F, Wei Y S, Zheng J X, *et al.* The behavior of tetracyclines and their degradation products during swine manure composting [J]. *Bioresource Technology*, 2011, **102**(10): 5924-5931.
- [27] Ding N F, Li W D, Liu C, *et al.* Decline in extractable kitasamycin during the composting of kitasamycin manufacturing waste with dairy manure and sawdust [J]. *Journal of Environmental Management*, 2014, **134**: 39-46.
- [28] 张杏艳, 陈中华, 邓海明, 等. 水环境中四环素类抗生素降解及去除研究进展[J]. *生态毒理学报*, 2016, **11**(6): 44-52.
- Zhang X Y, Chen Z H, Deng H M, *et al.* A review on degradation and elimination of tetracycline antibiotics in water environment[J]. *Asian Journal of Ecotoxicology*, 2016, **11**(6): 44-52.
- [29] Morrison RT, Boyd RN. *Organic chemistry* (4th ed.) [M]. Boston: Allyn and Bacon, 1983.
- [30] Arikian O A, Mulbry W, Rice C. Management of antibiotic residues from agricultural sources: use of composting to reduce chlortetracycline residues in beef manure from treated animals [J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, **164**(2-3): 483-489.
- [31] Zhang H C, Huang C H. Adsorption and oxidation of fluoroquinolone antibacterial agents and structurally related amines with goethite[J]. *Chemosphere*, 2007, **66**(8): 1502-1512.
- [32] Loke M L, Jespersen S, Vreeken R, *et al.* Determination of oxytetracycline and its degradation products by high-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry in manure-containing anaerobic test systems[J]. *Journal of Chromatography B*, 2003, **783**(1): 11-23.
- [33] Halling-Sørensen B, Sengeløv G, Tjørnelund J. Toxicity of tetracyclines and tetracycline degradation products to environmentally relevant bacteria, including selected tetracycline-resistant bacteria[J]. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 2002, **42**(3): 263-271.

## CONTENTS

Spatial-Temporal Change Evolution of PM <sub>2.5</sub> in Typical Regions of China in Recent 20 Years	LUO Yi, DENG Qiong-fei, YANG Kun, <i>et al.</i>	(3003)
Evaluation the Extent of Health Damage Caused by PM <sub>2.5</sub> Particulate in Xi'an City	WEI Guo-ru, SHI Xing-min	(3014)
Analysis of Chemical Composition, Source and Evolution of Submicron Particles in Xianghe, Hebei Province	JIANG Qi, WANG Fei, SUN Ye-le	(3022)
Characteristics and Source Analysis of Carbonaceous Components of PM <sub>2.5</sub> During Autumn in the Northern Suburb of Nanjing	XU Zu-fei, CAO Fang, GAO Song, <i>et al.</i>	(3033)
Comparison of Chemical Components Characteristics of PM <sub>2.5</sub> Between Haze and Clean Periods During Summertime in Lin'an	LIANG Lin-lin, SUN Jun-ying, ZHANG Yang-mei, <i>et al.</i>	(3042)
Characteristics and Sources of Carbon Components in PM <sub>2.5</sub> During Autumn and Winter in Panjin City	ZHANG Lei, JI Ya-qin, ZHANG Jun, <i>et al.</i>	(3051)
Aerosol Optical Properties and Light Absorption Enhancement of EC During Wintertime in Nanjing	HUANG Cong-cong, MA Yan, ZHENG Jun	(3057)
Concentration, Solubility, and Dry Deposition Flux of Trace Elements in Fine and Coarse Particles in Qingdao During Summer	LI Peng-zhi, LI Qian, SHI Jin-hui, <i>et al.</i>	(3067)
Characteristics and Sources of Dissolved Heavy Metals in Summer Precipitation of Taiyuan City, China	YE Ai-ling, CHENG Ming-chao, ZHANG Lu, <i>et al.</i>	(3075)
Characteristics of and Factors Affecting Atmospheric CO <sub>2</sub> Concentration in Hangzhou	PU Jing-jiao, XU Hong-hui, JIANG Yu-jun, <i>et al.</i>	(3082)
Treatment Status and Emission Characteristics of Volatile Organic Compounds from Typical Industrial Sources	JING Sheng-ao, WANG Hong-li, ZHU Hai-lin, <i>et al.</i>	(3090)
Characteristics of Industrial VOCs Emission Sources and Control Technology Application in a Prefecture-level City Region-Based on Qinhuangdao City	..... HU Xu-ru, HU Xiao-yu, WANG Can	(3096)
Pollution Condition and Health Risk Assessment of VOCs in Fermentation Exhaust from Penicillin Production	GUO Bin, YAO Rui-jing, ZHANG Shuo, <i>et al.</i>	(3102)
Measurements of OC and EC Emission Factors for Light-duty Gasoline Vehicles	HUANG Cheng, HU Qing-yao, LU Jun	(3110)
Pollution Levels and Risk Assessment of Heavy Metals from Atmospheric Deposition in Nanjing	TIAN Chun-hui, YANG Ruo-zhu, Gulizhaer Yilihamu, <i>et al.</i>	(3118)
Contamination Levels and Source Analysis of Heavy Metals in the Finer Particles of Urban Road Dust from Xi'an, China	SHI Dong-qí, LU Xin-wei	(3126)
pCO <sub>2</sub> in the Main Rivers of the Three Gorges Reservoir and Its Influencing Factors	LUO Jia-chen, MAO Rong, LI Si-yue	(3134)
Major Ionic Features and Their Possible Controls in the Surface Water and Groundwater of the Jinghe River	KOU Yong-chao, KUA Kun, LI Zhou, <i>et al.</i>	(3142)
Urban Runoff Phosphorus Removal Pathways in Bioretention Systems	LI Li-qing, LIU Yu-qing, YANG Jia-min, <i>et al.</i>	(3150)
Succession Characteristics of Phytoplankton Functional Groups and Their Relationships with Environmental Factors in Dianshan Lake, Shanghai	..... YANG Li, ZHANG Wei, SHANG Guang-xia, <i>et al.</i>	(3158)
Spatio-temporal Variations of Diatom Community and Their Relationship with Water Environment in Fuxian Lake	LI Rui, CHEN Guang-jie, KANG Wen-gang, <i>et al.</i>	(3168)
Effects of Algal Blooms and Their Degradation on the Sediment-water Micro-interface	WANG Yong-ping, XIE Rui, CHAO Jian-ying, <i>et al.</i>	(3179)
Effect of Biochar on Root Morphological Characteristics of Wetland Plants and Purification Capacity of Constructed Wetland	XU De-fu, PAN Qian-cheng, LI Ying-xue, <i>et al.</i>	(3187)
Preparation of Mn-Co/Ceramic Honeycomb Catalyst and Its Performance on Catalytic Ozonation of Hydroquinone	ZHANG Lan-he, GAO Wei-wei, CHEN Zi-cheng, <i>et al.</i>	(3194)
Degradation Mechanism of Tetracycline Using Fe/Cu Oxides as Heterogeneous Activators of Peroxymonosulfate	LI Jing, BAO Jian-guo, DU Jiang-kun, <i>et al.</i>	(3203)
Behavior and Mechanisms of Cd(II) Adsorption from Water by Niobate-Modified Titanate Nanosheets	KANG Li, LIU Wen, LIU Xiao-na, <i>et al.</i>	(3212)
Trace Amounts of Phosphorus Removal Based on the in-suit Oxidation Products of Iron or Manganese in a Biofilter	CAI Yan-an, BI Xue-jun, ZHANG Jia-ning, <i>et al.</i>	(3222)
Effect of Preparation Methods on Phosphate Adsorption by Iron-Titanium Binary Oxide: Coprecipitation and Physical Mixing	ZHONG Yan, WANG Jiang-yan, CHEN Jing, <i>et al.</i>	(3230)
Effects of Conductivity on Performance of a Combined System of Anaerobic Acidification, Forward Osmosis, and a Microbial Fuel Cell	LU Yu-qin, LIU Jin-meng, WANG Xin-hua, <i>et al.</i>	(3240)
COD Requirement for Biological Phosphorus Removal Granule System Under Different Phosphorus Concentrations	LI Dong, CAO Mei-zhong, GUO Yue-zhou, <i>et al.</i>	(3247)
Effect of Substrate Concentration on SAD Collaborative Nitrogen and Carbon Removal Efficiency in an ABR Reactor	ZHANG Min, JIANG Ying, WANG Yao-qi, <i>et al.</i>	(3254)
Evaluation of Advanced Nitrogen Removal from Coking Wastewater Using Sulfide Iron-containing Sludge as a Denitrification Electron Donor	..... FU Bing-bing, PAN Jian-xin, MA Jing-de, <i>et al.</i>	(3262)
Stability of Nitrification Combined with Limited Filamentous Bulking Under Intermittent Aeration	GAO Chun-di, SUN Da-yang, AN Ran, <i>et al.</i>	(3271)
Filamentous Sludge Microbial Community of a SBR Reactor Based on High-throughput Sequencing	HONG Ying, YAO Jun-qin, MA Bin, <i>et al.</i>	(3279)
Impact of Nano Zero-Valent Iron (NZVI) on Methanogenic Activity, Physiological Traits, and Microbial Community Structure in Anaerobic Digestion	..... SU Run-hua, DING Li-li, REN Hong-qiang	(3286)
Effects of Gas/Water Ratio on the Characteristics of Nitrogen Removal and the Microbial Community in Post Solid-Phase Denitrification Biofilter Process	..... ZHANG Qian, JI Fang-ying, FU Xu-fang, <i>et al.</i>	(3297)
Comparison of Extraction Methods of Extracellular Polymeric Substances from Activated Sludge	SUN Xiu-yue, TANG Zhu, YANG Xin-ping	(3306)
Identification and Characterization of a Hypothermic Alkaliphilic Aerobic Denitrifying Bacterium <i>Pseudomonas monteilii</i> Strain H97	CAI Xi, HE Teng-xia, YE Qing, <i>et al.</i>	(3314)
Isolation, Identification, and Biodegradation Behaviors of a Perfluorooctane Sulfonic Acid Precursor (PreFOSs) Degrading Bacterium from Contaminated Soil	..... ZHAO Shu-yan, ZHOU Tao, WANG Bo-hui, <i>et al.</i>	(3321)
Microbial Community Distributions in Soils of an Oil Exploitation Site	CAI Ping-ping, NING Zhuo, HE Ze, <i>et al.</i>	(3329)
Characteristics of Soil Physicochemical Properties and Enzyme Activities over Different Reclaimed Years in a Copper Tailings Dam	WANG Rui-hong, JIA Tong, CAO Miao-wen, <i>et al.</i>	(3339)
Risk Analysis of Heavy Metal Contamination in Farmland Soil Around a Bauxite Residue Disposal Area in Guangxi	GUO Ying, LI Yu-bing, XUE Sheng-guo, <i>et al.</i>	(3349)
Occurrence and Distribution of Phthalate Esters in Urban Soils of Chongqing City	YANG Zhi-hao, HE Ming-jing, YANG Ting, <i>et al.</i>	(3358)
Profile Distribution of Paddy Soil Organic Carbon and Its Influencing Factors in Chengdu Plain	LI Shan, LI Qi-quan, WANG Chang-quan, <i>et al.</i>	(3365)
Correlation Between Soil Organic and Inorganic Carbon and Environmental Factors in Cotton Fields in Different Continuous Cropping Years in the Oasis of the Northern Tarim Basin	..... ZHAO Jing-jing, GONG Lu, AN Shen-qun, <i>et al.</i>	(3373)
Soil Organic Carbon Components and Their Correlation with Soil Physicochemical Factors in Four Different Land Use Types of the Northern Tarim Basin	..... AN Shen-qun, GONG Lu, LI Yang-mei, <i>et al.</i>	(3382)
Short-term Mechanism of Warming-induced Stability for Organic Carbon in the Karst Plateau Soil	TANG Guo-yong, ZHANG Chun-hua, LIU Fang-yan, <i>et al.</i>	(3391)
Effects of Boron Treatment on Arsenic Uptake and Efflux in Rice Seedlings	ZHU Yi, SUN Guo-xin, CHEN Zheng, <i>et al.</i>	(3400)
Comparative Analysis of Different Soil Amendment Treatments on Rice Heavy Metal Accumulation and Yield Effect in Pb and Cd Contaminated Farmland	..... HU Xue-fang, TIAN Zhi-qing, LIANG liang, <i>et al.</i>	(3409)
Seasonal Variation in Surface Ozone and Its Effect on the Winter Wheat and Rice in Nanjing, China	ZHAO Hui, ZHENG You-fei, WEI Li, <i>et al.</i>	(3418)
Hair Mercury Concentrations in Residents of Fuling and Zhongxian in the Three Gorges Reservoir Region and Their Influence Factors	CHENG Nan, XIE Qing, FAN Yu-fei, <i>et al.</i>	(3426)
Removal of Typical Antibiotics During Aerobic Composting of Human Feces	SHI Hong-lei, WANG Xiao-chang, LI Qian	(3434)
Effect of COD/SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> Ratio on Anaerobic Digestion of Penicillin Bacterial Residues	QIANG Hong, LI Yu-you, PEI Meng-fu	(3443)
Characteristics of Odor Emissions from Fresh Compost During Storage and Application	HE Pin-jing, JIANG Ning-ling, XU Xian, <i>et al.</i>	(3452)
Effects of the Veterinary Antibiotic Sulfamethazine on Ammonia Volatilization from a Paddy Field Treated with Conventional Synthetic Fertilizer and Manure	..... PANG Bing-kun, ZHANG Jing-sha, WU Jie, <i>et al.</i>	(3460)